

PATENT
0425-0881P

IN THE U.S. PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: OHTAWA, Yasuki et al. Conf.:
Appl. No.: NEW Group:
Filed: March 8, 2002 Examiner:
For: SOFTENER COMPOSITION



L E T T E R

Assistant Commissioner for Patents
Washington, DC 20231

March 8, 2002

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119 and 37 C.F.R. § 1.55(a), the applicant(s) hereby claim(s) the right of priority based on the following application(s):

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Filed</u>
JAPAN	2001-065090	March 8, 2001
JAPAN	2001-065091	March 8, 2001
JAPAN	2001-093069	March 28, 2001

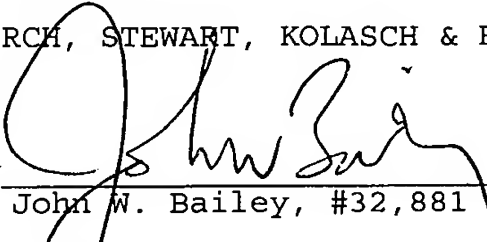
A certified copy of the above-noted application(s) is(are) attached hereto.

If necessary, the Commissioner is hereby authorized in this, concurrent, and future replies, to charge payment or credit any overpayment to Deposit Account No. 02-2448 for any additional fee required under 37 C.F.R. §§ 1.16 or 1.17; particularly, extension of time fees.

Respectfully submitted,

BIRCH, STEWART, KOLASCH & BIRCH, LLP

By


John W. Bailey, #32,881

JWB/rmv
0425-0881P

P.O. Box 747
Falls Church, VA 22040-0747
(703) 205-8000

Attachment

OTTAWA dal.
March 8, 2002
Birch, Stewart Koloski
Birch
703/205-8000

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

Doi bet #

0425-05817

183

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 3月 8日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-065090

出 願 人

Applicant(s):

花王株式会社

J1046 U.S. PTO

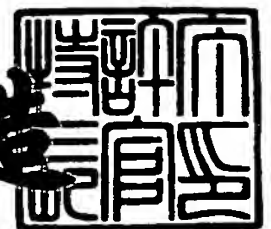
10/092983



2001年 9月27日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3088810

【書類名】 特許願

【整理番号】 101K0028

【提出日】 平成13年 3月 8日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 D06M013/322

【発明者】

【住所又は居所】 和歌山県和歌山市湊 1 3 3 4 花王株式会社研究所内

【氏名】 大田和 康規

【発明者】

【住所又は居所】 和歌山県和歌山市湊 1 3 3 4 花王株式会社研究所内

【氏名】 富藤 健

【発明者】

【住所又は居所】 和歌山県和歌山市湊 1 3 3 4 花王株式会社研究所内

【氏名】 坂口 明

【発明者】

【住所又は居所】 和歌山県和歌山市湊 1 3 3 4 花王株式会社研究所内

【氏名】 加藤 徹

【特許出願人】

【識別番号】 000000918

【氏名又は名称】 花王株式会社

【代理人】

【識別番号】 100063897

【弁理士】

【氏名又は名称】 古谷 馨

【電話番号】 03(3663)7808

【選任した代理人】

【識別番号】 100076680

【弁理士】

【氏名又は名称】 溝部 孝彦

【選任した代理人】

【識別番号】 100087642

【弁理士】

【氏名又は名称】 古谷 聡

【選任した代理人】

【識別番号】 100091845

【弁理士】

【氏名又は名称】 持田 信二

【選任した代理人】

【識別番号】 100098408

【弁理士】

【氏名又は名称】 義経 和昌

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010685

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

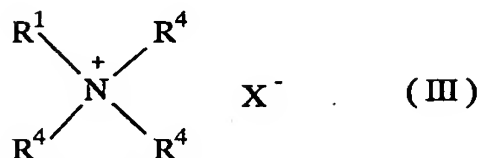
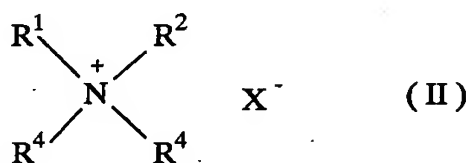
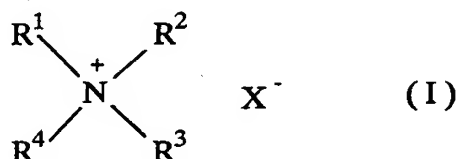
【発明の名称】 柔軟剤組成物

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記（a）及び（b）成分を含有する柔軟剤組成物。

（a）一般式（I）、（II）又は（III）

【化1】

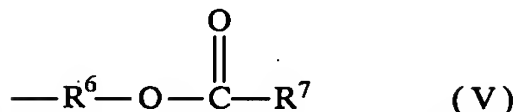
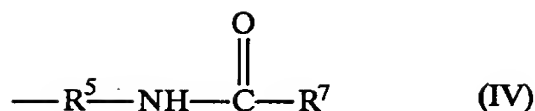


（式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、同一又は異なって、エーテル基、エステル基又はアミド基で分断されていても良い総炭素数8～40の長鎖アルキル基又はアルケニル基を示す。 R^4 は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基又はヒドロキシアルキル基を示し、複数個の R^4 は同一でも異なってもよい。 X^- は陰イオン基を示す。）で表される第4級アンモニウム塩から選ばれる少なくとも1種からなり、一般式（I）、（II）又は（III）で表される第4級アンモニウム塩の合計量に対する一般式（I）で表される第4級アンモニウム塩の割合が50重量%以上であるカチオン性界面活性剤

（b）脂肪酸エステルのアルキレンオキサイド付加物から選ばれる少なくとも1種の非イオン性界面活性剤

【請求項2】 R^1 、 R^2 及び R^3 が、同一又は異なって、式（IV）又は（V）で表される基である請求項1記載の柔軟剤組成物。

【化2】



(式中 R^5 及び R^6 は同一又は異なって、炭素数2～6のアルキレン基を示し、 R^7CO は炭素数8～30の脂肪酸から水酸基を除いた残基を示す。)

【請求項3】 脂肪酸エステルของアルキレンオキサイド付加物のHLBが9～17である請求項1又は2記載の柔軟剤組成物。

【請求項4】 (a)成分と(b)成分の配合割合が、(a)/(b)(重量比)=50/1～1/2である請求項1～3のいずれかに記載の柔軟剤組成物。

【請求項5】 組成物中の(a)成分の配合量が3～50重量%である請求項1～4のいずれかに記載の柔軟剤組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は優れた柔軟性を有する柔軟剤組成物に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

近年、繊維用柔軟剤として市販されている商品はほとんどがジ(長鎖アルキル)ジメチルアンモニウムクロライドに代表される1分子中に2つの長鎖アルキル基を有する第4級アンモニウム塩を含む組成物である。しかし、このような第4級アンモニウム塩は、処理後の残存物が河川等の自然界に放出された場合、殆どが生分解されずに蓄積されるという問題点がある。

【0003】

この問題点の改良品としてN-メチル-N,N-ビス(長鎖アルカノイルオキシエチル)-N-(2-ヒドロキシエチル)アンモニウムメチルサルフェート等が上市されている。このものは、上記第4級アンモニウム塩に比べ、生分解性は改善され

ているものの柔軟性が充分満足できる基剤ではない。その他の柔軟基剤についてもその殆どがジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩構造であり、トリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩については、親水基に対して親油基が多く、水に対する分散性が困難で、結果的に柔軟性能が十分に発現しないという理由で、柔軟基剤としての使用は検討されていなかった。

【0004】

本発明の課題は、これまで柔軟基剤としては使用困難とされてきたトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩を含有し、柔軟性能が充分満足できる柔軟剤組成物を提供することにある。

【0005】

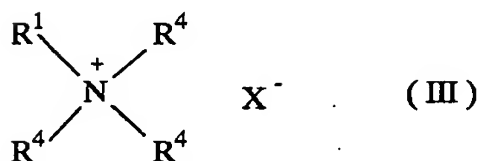
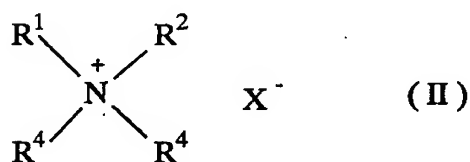
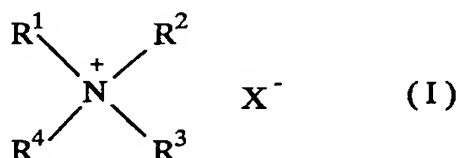
【課題を解決するための手段】

本発明は、下記 (a) 及び (b) 成分を含有する柔軟剤組成物を提供する。

(a) 一般式 (I)、(II) 又は (III)

【0006】

【化3】



【0007】

(式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、同一又は異なって、エーテル基、エステル基又はアミド基で分断されていても良い総炭素数8~40の長鎖アルキル基又はアルケニル基

を示す。 R^4 は炭素数1～6のアルキル基、アルケニル基又はヒドロキシアルキル基を示し、複数の R^4 は同一でも異なってもよい。 X^- は陰イオン基を示す。)で表される第4級アンモニウム塩から選ばれる少なくとも1種からなり、一般式(I)、(II)又は(III)で表される第4級アンモニウム塩の合計量に対する一般式(I)で表される第4級アンモニウム塩の割合が50重量%以上であるカチオン性界面活性剤

(b) 脂肪酸エステルのアリレンオキサイド付加物から選ばれる少なくとも1種の非イオン性界面活性剤

【0008】

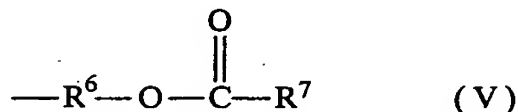
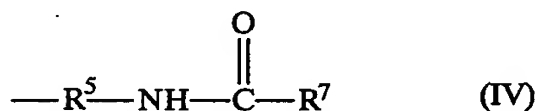
【発明の実施の形態】

〔(a) 成分〕

本発明の(a)成分を構成する上記一般式(I)、(II)又は(III)で表される第4級アンモニウム塩(以下、それぞれ第4級アンモニウム塩(I)、(II)、(III)という)において、 R^1 、 R^2 及び R^3 としては、それぞれ、式(IV)又は(V)で表される基が好ましい。

【0009】

【化4】



【0010】

(式中 R^5 及び R^6 は同一又は異なって、炭素数2～6、好ましくは2～3のアリレン基を示し、 $R^7\text{CO}$ は炭素数8～30、好ましくは12～24の脂肪酸から水酸基を除いた残基を示す。)

R^4 としては、炭素数1～3のアルキル基又はヒドロキシアルキル基が好ましく、メチル基、エチル基、ヒドロキシエチル基が更に好ましい。 X^- は塩素イオン等のハロゲンイオン、メチル硫酸、エチル硫酸等のアルキル硫酸イオンが好ましい

【 0 0 1 1 】

第4級アンモニウム塩（I）としては、例えばN-メチル-N,N,N-トリ（長鎖アルカノイルオキシエチル）アンモニウム塩、N-メチル-N,N-ジ（長鎖アルカノイルオキシエチル）-N-長鎖アルカノイルアミノプロピルアンモニウム塩、N-メチル-N,N-ジ（長鎖アルカノイルオキシエチル）-N-長鎖アルカノイルアミノエチルアンモニウム塩、N-メチル-N,N-ジ（長鎖アルカノイルオキシエチル）-N-長鎖アルキルアンモニウム塩、N-メチル-トリ長鎖アルキルアンモニウム塩等が挙げられ、長鎖アルカノイルオキシ基及び／又は長鎖アルカノイルアミノ基を有するものが、生分解性が良好であるため好ましい。

【 0 0 1 2 】

これらの第4級アンモニウム塩（I）は、製造時に副生する第4級アンモニウム塩（II）、（III）が含まれるが、第4級アンモニウム塩（I）、（II）及び（III）の合計量に対する第4級アンモニウム塩（I）の割合は50重量%以上、好ましくは55～100重量%、更に好ましくは60～100重量%である。

【 0 0 1 3 】

第4級アンモニウム塩（I）を得る方法は特に限定されず、例えば、トリエタノールアミン等のトリアルカノールアミンをトリエステル化反応後、4級化剤で4級化する方法、N-アミノプロピル-N,N-ヒドロキシエチルアミンの様な分子内にアミノ基を持つアルカノールアミン類をトリアシル化反応後、4級化剤で4級化する方法等が挙げられる。この時、トリエステル化、トリアシル化反応に用いる脂肪酸又はそのエステルとしては、牛脂脂肪酸、硬化牛脂脂肪酸、パームステアリン酸、硬化パームステアリン酸又はそれらから選ばれる2種以上の混合物のような炭素数8～30、好ましくは12～24の長鎖脂肪酸、及びその低級アルキルエステル、又は油脂等が挙げられる。また4級化剤としては、ジメチル硫酸、ジエチル硫酸、メチルクロライド等が挙げられる。

【 0 0 1 4 】

〔（b）成分〕

（b）成分の脂肪酸エステルのアルキレンオキサイド付加物としては、HLBが9

～17のものが好ましく、10～16のものが更に好ましい。ここで、HLBは、「W.C.G riffin, J.Soc.Cosmet.Chemists, 5, 249(1954)」記載のグリフィン式で得られる値である。

【0015】

脂肪酸エステルのアルキレンオキサイド付加物は、牛脂脂肪酸、硬化牛脂脂肪酸、パームステアリン酸、硬化パームステアリン酸又はそれらから選ばれる2種以上の混合物のような炭素数8～30、好ましくは12～24の長鎖脂肪酸の低級アルキル（アルキル基の炭素数1～3）エステルにアルキレンオキサイドを付加させることにより得られるもの、メタノール、エタノール、イソプロパノール等の低級アルコールにアルキレンオキサイドを付加させた後、上記のような長鎖脂肪酸又はその低級アルキルエステルを用いてエステル化することにより得られるもの等が挙げられる。付加させるアルキレンオキサイドとしては、エチレンオキサイド、プロピレンオキサイド等が挙げられ、エチレンオキサイドが好ましい。アルキレンオキサイドの平均付加モル数は、5～100が好ましく、10～30が更に好ましい。

【0016】

〔柔軟剤組成物〕

本発明の柔軟剤組成物中の（a）成分と（b）成分の配合割合は、（a）／（b）（重量比）＝50／1～1／2が好ましく、20／1～1／1が更に好ましい。また、組成物中の（a）成分の配合量は、3～50重量％が好ましく、4～30重量％が更に好ましい。

【0017】

（a）成分と（b）成分とは、柔軟剤組成物中に、それぞれ別途に配合しても良いが、（a）及び（b）成分をあらかじめ混合した後、同時に配合する方がより好ましい。これら（a）及び（b）成分は、水に分散させることにより液体柔軟剤とすることができる。

【0018】

また、本発明の柔軟剤組成物には、更に柔軟性能を向上させるために、高級アルコール（好ましくは炭素数8～24）、高級脂肪酸（好ましくは炭素数8～24）

を、保存安定剤として、エタノール、イソプロパノール等の低級アルコール、グリコール、ポリオール、更にはそれらのエチレンオキサイド、プロピレンオキサイド付加物を、更には無機塩、pH調整剤、ハイドロトロップ剤、香料、消泡剤、顔料等を必要に応じて添加することができる。

【0 0 1 9】

【実施例】

例中の%は、特記しない限り重量基準である。

【0 0 2 0】

実施例 1

トリエタノールアミン149gに対して硬化牛脂脂肪酸821gを用いて200℃、窒素雰囲気下で10時間エステル化反応を行い、ついでイソプロパノール184gを加え、ジメチル硫酸126gを用いて60℃で4級化反応を行い、N-メチル-N,N,N-トリ（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）アンモニウム メチルサルフェートのイソプロパノール溶液を得た。この溶液はNMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量46%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量7%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量0%であった。この得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、60℃に加熱後、溶解した状態で60℃の水に滴下し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0 0 2 1】

実施例 2

N,N-ジ（2-ヒドロキシエチル）アミノプロピルアミン162gと硬化牛脂脂肪酸821gを用いて実施例 1 と同様の反応を行い、ついでイソプロパノール186gを加えジメチル硫酸126gを用いて4級化反応を行い、N-メチル-N,N-ジ（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）-N-硬化牛脂アルカノイルアミノプロピルアンモニウム メチルサルフェートのイソプロパノール溶液を得た。この溶液は、NMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量58%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量7%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量0%であった。この

得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、実施例1と同様に硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0022】

実施例3

N,N-ジ（2-ヒドロキシエチル）-N-硬化牛脂アルカノイルアミノエチルアミン404gと硬化牛脂脂肪酸547gを用いて実施例1と同様にエステル化反応を行い、ついでイソプロパノール184gを加えジメチル硫酸126gを用いて4級化反応を行い、N-メチル-N,N-ジ（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）-N-硬化牛脂アルカノイルアミノエチルアンモニウム メチルサルフェートのイソプロパノール溶液を得た。この溶液は、NMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量42%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量7%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量0%であった。この得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、実施例1と同様に硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0023】

実施例4

N,N-ジ（2-ヒドロキシエチル）-N-硬化牛脂アルキルアミン299gと硬化牛脂脂肪酸547gを用いて実施例1と同様にエステル化反応を行い、ついでイソプロパノール165gを加えジメチル硫酸を用いて4級化反応を行い、N-メチル-N,N-ジ（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）-N-硬化牛脂アルキルアンモニウム メチルサルフェートのイソプロパノール溶液を得た。この溶液は、NMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量57%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量8%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量0%であった。この得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、実施例1と同様に硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0024】

実施例 5

N,N,N-トリ硬化牛脂アルキルアミン742gにイソプロパノール140gを加え、塩化メチル61gで4級化反応を行い、N-メチル-N,N,N-トリ硬化牛脂アルキルアンモニウムクロライドのイソプロパノール溶液を得た。この溶液は、NMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量80%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量5%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量0%であった。この得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、実施例1と同様に硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0025】

実施例 6

硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド15モル付加物（HLB=14.9）を実施例1における硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド12モル付加物の代わりに用いる以外は実施例1と同様な操作を行い、柔軟剤組成物を調製した。

【0026】

実施例 7

硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド18モル付加物（HLB=15.5）を実施例1における硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド12モル付加物の代わりに用いる以外は実施例1と同様な操作を行い、柔軟剤組成物を調製した。

【0027】

実施例 8

硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド21モル付加物（HLB=16.0）を実施例1における硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキシド12モル付加物の代わりに用いる以外は実施例1と同様な操作を行い、柔軟剤組成物を調製した。

【0028】

実施例 9

硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド9モル付加物（HLB=12.9）を実施例1における硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物の代わりに用いる以外は実施例1と同様な操作を行い、柔軟剤組成物を調製した。

【0029】

比較例1

トリエタノールアミン149gに対して硬化牛脂脂肪酸547gを用いて200℃、窒素雰囲気下で10時間エステル化反応を行い、ついでイソプロパノール139gを加え、ジメチル硫酸126gを用いて60℃で4級化反応を行い、N-メチル-N,N-ビス（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）-N-(2-ヒドロキシエチル)アンモニウム メチルサルフェートのイソプロパノール溶液を得た。この溶液は、NMR測定によりトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量12%、ジ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量35%、モノ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩含量15%であった。この得られたイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、実施例1と同様に硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物（HLB=14.0）2gと混合し、柔軟剤組成物100gを調製した。

【0030】

比較例2

実施例1と同様にして得られたN-メチル-N,N,N-トリ（硬化牛脂アルカノイルオキシエチル）アンモニウムメチルサルフェートのイソプロパノール溶液を第4級アンモニウム塩の合計が5gとなるような量を取り、硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物なしで柔軟剤組成物100gを得た。

【0031】

比較例3

硬化牛脂脂肪酸メチルエステルのエチレンオキサイド12モル付加物を使用しないこと以外は比較例1と同様にして柔軟剤組成物100gを調製した。

【0032】

実施例1～9及び比較例1～3で得られた柔軟剤組成物を用いて、下記方法で柔軟性を評価した。結果を表1に示す。

【0033】

＜柔軟性の評価法＞

① 柔軟仕上げ処理

市販の木綿タオル又はアクリルジャージ1kgを、15リットル洗濯機を用い、3.5° DH硬水にて市販洗剤アタック（花王株式会社製、登録商標）で5回繰り返し洗濯した後、上記柔軟剤組成物を25mL投入し、25℃、1分間攪拌下で処理した。

【0034】

② 柔軟性評価

上記柔軟仕上げ処理した布を温室で乾燥後、25℃、65%RH恒温、恒温室にて24時間放置した。これらの布について柔軟性の評価を行った。評価は前記比較例3で調製した柔軟剤組成物で処理した布を対照にして、10人の熟練試験者が一対比較を行い、次の基準で評価し、10人の評価の平均値を小数点以下1桁で四捨五入して評価値とした。

+2；対照より柔らかい

+1；対照よりやや柔らかい

0；対照と柔らかさが同等

-1；対照よりややかたい

-2；対照よりかたい

【0035】

【表 1】

	柔軟性評価結果	
	木綿タオル	アクリル ジャージ
実施例1	+2	+1
実施例2	+2	+1
実施例3	+2	+1
実施例4	+2	+1
実施例5	+2	+2
実施例6	+2	+2
実施例7	+2	+2
実施例8	+1	+2
実施例9	+1	+1
比較例1	0	0
比較例2	-2	-2

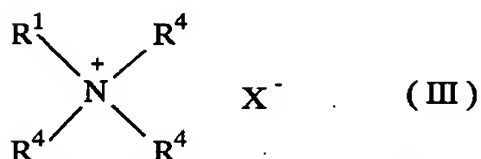
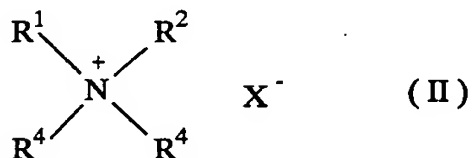
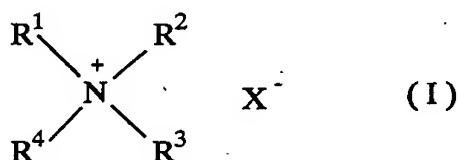
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 これまで柔軟基剤として使用困難とされてきたトリ長鎖アルキル第4級アンモニウム塩を含有し、柔軟性能が十分満足できる柔軟剤組成物の提供。

【解決手段】 (a) 第4級アンモニウム塩 (I)、(II) 又は (III) から選ばれる少なくとも1種からなり、これらの合計量に対する第4級アンモニウム塩 (I) の割合が50重量%以上であるカチオン性界面活性剤、及び (b) 脂肪酸エステルのアлкиレンオキサイド付加物から選ばれる少なくとも1種の非イオン性界面活性剤を含有する柔軟剤組成物。

【化1】



(式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、エーテル基、エステル基又はアミド基で分断されていても良い総炭素数8~40の長鎖アルキル基等、 R^4 は炭素数1~6のアルキル基等、 X^- は陰イオン基を示す。)

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000000918]

1. 変更年月日 1990年 8月24日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号

氏 名 花王株式会社